

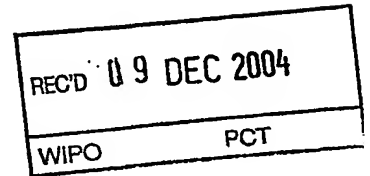
日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

18.10.2004

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日
Date of Application: 2004年 8月24日



出願番号
Application Number: 特願2004-243811
[ST. 10/C]: [JP 2004-243811]

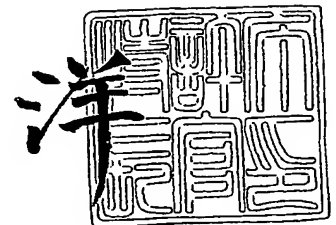
出願人
Applicant(s): 原子燃料工業株式会社

PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2004年11月26日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

小川



BEST AVAILABLE COPY

出証番号 出証特2004-3107487

【書類名】 特許願
【整理番号】 G031211
【提出日】 平成16年 8月24日
【あて先】 特許庁長官殿
【国際特許分類】 G21C 3/58
【発明者】
 【住所又は居所】 茨城県那珂郡東海村村松 3 1 3 5 - 4 1 原子燃料工業株式会社
 東海事業所内
 高橋 昌史
 【氏名】
【特許出願人】
 【識別番号】 000165697
 【氏名又は名称】 原子燃料工業株式会社
【代理人】
 【識別番号】 100087594
 【弁理士】
 【氏名又は名称】 福村 直樹
【手数料の表示】
 【予納台帳番号】 012069
 【納付金額】 16,000円
【提出物件の目録】
 【物件名】 特許請求の範囲 1
 【物件名】 明細書 1
 【物件名】 図面 1
 【物件名】 要約書 1
 【包括委任状番号】 9807699

【書類名】 特許請求の範囲

【請求項 1】

硝酸ウラニルを含有する原液を、アンモニア水溶液に滴下させて製造するバッチ方式の重ウラン酸アンモニウム粒子の製造方法であって、前回のバッチ製造において前記原液をアンモニア水溶液に滴下させるために配置された原液移送配管中に残存した前記原液を、新たなバッチ製造に用いる前記原液に混合することを特徴とする重ウラン酸アンモニウム粒子の製造方法。

【請求項 2】

硝酸ウラニルを含有する原液を貯留する原液貯槽、前記原液を原液滴下器へ移送する原液移送配管、前記原液をアンモニア水溶液に滴下させる原液滴下器およびアンモニア水溶液を貯留するアンモニア水溶液貯槽をその順に配置したバッチ方式の重ウラン酸アンモニウム粒子の製造装置であって、前記原液滴下器と前記アンモニア水溶液貯槽との間に、前回のバッチ製造において前記原液移送配管中に残存した前記原液を受容する残存原液受器を設置し、かつ前記残存原液受器と前記原液貯槽とを接続して前記原液移送配管中に残存した前記原液を前記原液貯槽へ循環移送する残存原液循環移送配管を設置して成ることを特徴とする重ウラン酸アンモニウム粒子の製造装置。

【書類名】明細書

【発明の名称】重ウラン酸アンモニウム粒子の製造方法および製造装置

【技術分野】

【0001】

この発明は、重ウラン酸アンモニウム粒子の製造方法および製造装置に関し、さらに詳しくは、変形などのない均質な重ウラン酸アンモニウム粒子を高い歩留まりで製造することのできる、高温ガス炉用燃料の燃料核の製造に有用な重ウラン酸アンモニウム粒子の製造方法および製造装置に関する。

【背景技術】

【0002】

高温ガス炉の燃料を投入する炉心は、熱容量が大きく、高温健全性に優れた黒鉛により形成されている。この高温ガス炉においては、冷却ガスとして、高温下でも化学反応を起こすことがなく、安全性の高いヘリウムガス等の気体を用いられているので、出口温度が高い場合でも冷却ガスを安全に取り出すことができる。したがって、炉心の温度が約900℃程度まで上昇したとしても、高温に加熱された前記冷却ガスは、発電はもとより、水素製造装置、その他の化学プラントなど、幅広い分野において、安全な熱利用を可能としている。

【0003】

また、この高温ガス炉に投入される高温ガス炉用燃料は、一般的に、燃料核とこの燃料核の周囲を被覆する被覆層とを備えて成る。燃料核は、例えば、二酸化ウランをセラミックス状に焼結して成る直径約350～650μmの微小粒子である。

【0004】

前記被覆層は、4層構造をなし、燃料核表面側より、第一層、第二層、第三層および第四層を有している。第一層は、密度約1g/cm³の低密度熱分解炭素により形成され、ガス状の核分裂生成物(FP)のガス溜めとしての機能を有すると共に、燃料核のスウェリングを吸収するバッファとしての機能をも有している。第二層は、密度約1.8g/cm³の高密度熱分解炭素により形成され、ガス状FPの保持機能を有している。第三層は、密度約3.2g/cm³の炭化珪素(SiC)により形成され、固体FPの保持機能を有し、被覆層の主要な強度部材である。また、第四層は、密度約1.8g/cm³の高密度熱分解炭素により形成され、ガス状FPの保持機能を有すると共に、第三層の保護層としての機能をも有している。これら被覆層を形成する被覆粒子の直径は、通常は、約500～1000μmである。

【0005】

前記4層の被覆層により被覆された燃料核(被覆燃料粒子)は、黒鉛マトリックス中に分散され、一定形状の燃料コンパクトの形態に成型加工され、さらにこの燃料コンパクトは、黒鉛により形成された筒に一定数量収容され、上下に栓をして、燃料棒の形態とされる。最終的には、この燃料棒は、六角柱型黒鉛ブロックが有する複数の挿入口に入れられ、この六角柱型黒鉛ブロックを多数個、ハニカム状に配列し、複数段重ねることによって炉心が形成される。

【0006】

このような高温ガス炉用燃料は、一般的に、以下のような工程を経ることによって製造することができる。まず、酸化ウラン粉末を硝酸に溶解して硝酸ウラニル溶液を調製することができる。次いで、この硝酸ウラニル溶液に純水および増粘剤を加えて攪拌混合して原液を調製する。増粘剤は、原液の粘度を増大させ、後記のアンモニア水溶液中に滴下される原液である硝酸ウラニルの液滴が、落下中に自身の表面張力により真球状になるように添加される物質である。

【0007】

前記増粘剤としては、例えば、ポリビニルアルコール樹脂、アルカリ条件下で凝固する性質を有する樹脂、ポリエチレングリコール、メトロースなどを挙げることができる。このようにして調製された原液は、所定の温度に冷却され、粘度が調整された滴下原液とさ

れた後、原液滴下器が有する細径の原液滴下ノズルから、このノズルを振動させることによってアンモニア水溶液貯槽内のアンモニア水溶液中に滴下される。

【0008】

アンモニア水溶液中に滴下される液滴には、アンモニア水溶液表面に達するまでの空間において、アンモニアガスが吹きかけられる。このアンモニアガスによって液滴表面がゲル化して被膜が形成されるので、ゲル被膜が形成された液滴粒子は、アンモニア水溶液表面に落下する際の衝撃による変形が防止される。上に乗った液滴粒子の荷重により下の液滴粒子が変形しないよう、アンモニア水溶液貯槽内のアンモニア水溶液はアンモニア水溶液貯槽の下側から上側に向かって循環されている。このアンモニア水溶液貯槽内において、硝酸ウラニルとアンモニアとが反応して重ウラン酸アンモニウム粒子が形成される。

【0009】

アンモニア水溶液貯槽において形成された重ウラン酸アンモニウム粒子は、アンモニア水溶液貯槽に続設された後処理装置に移送される。この重ウラン酸アンモニウム粒子の後処理装置への移送は、通常は、アンモニア水溶液貯槽と後処理装置とを繋ぐ配管の弁を開放し、自重によりアンモニア水溶液と共に落下させることによって行われる。この後処理装置は、後処理槽を回転させながら、加熱により粒子の中心まで完全に硝酸ウラニルとアンモニアとを反応させて重ウラン酸アンモニウムを生成させる処理（熟成処理）、温水などにより重ウラン酸アンモニウム粒子を洗浄する処理（洗浄処理）および乾燥する処理（乾燥処理）を施す装置である。

【0010】

熟成、洗浄および乾燥処理された重ウラン酸アンモニウム粒子は、大気中で焙焼され、三酸化ウラン粒子となる。さらに、この三酸化ウラン粒子は、還元および焼結することにより、高密度のセラミックス状の二酸化ウラン粒子となる。このようにして形成された二酸化ウラン粒子は分級され、所定の粒子径を有する燃料核微粒子として得られる。

【0011】

このようにして得られた燃料核微粒子は、流動床に装荷され、被覆用ガスを熱分解することによって被覆が施される。例えば、前記第一層は、約1400℃でアセチレンを熱分解することによって形成することができ、前記第二層および第四層は、約1400℃でプロピレンを熱分解することによって形成することができる。また、例えば、前記第三層は、約1600℃でメチルトリクロロシランを熱分解することによって形成することができる。通常の燃料コンパクトは、被覆燃料粒子を黒鉛粉末および粘結剤などから成る黒鉛マトリックス材と共に中空円筒状または中密円筒状にプレス成型またはモールド成型した後、焼成して製造することができる。（非特許文献1および2参照）。

【非特許文献1】「原子炉材料ハンドブック」p221-p247, 昭和52年10月31日発行、日刊工業新聞社発行

【非特許文献2】「原子力ハンドブック」p161-p169, 平成7年12月20日発行、株式会社オーム社

【0012】

ところで、このような高温ガス炉用燃料の製造工程のうち、硝酸ウラニルを含有する原液を、アンモニア水溶液中に滴下させて重ウラン酸アンモニウム粒子を製造する工程においては、従来、図3に示すような重ウラン酸アンモニウム粒子の製造装置が採用され、バッチ方式による重ウラン酸アンモニウム粒子の製造方法が主流とされていた。

【0013】

前記従来の重ウラン酸アンモニウム粒子の製造装置1は、硝酸ウラニルを含有する原液2を貯留する原液貯槽3、前記原液2をアンモニア水溶液9に滴下させる原液滴下ノズル6を有する原液滴下器7へ移送する原液移送配管5およびアンモニア水溶液9を貯留するアンモニア水溶液貯槽10を有して形成されている。4は原液送液ポンプを、8は滴下原液を、11は重ウラン酸アンモニウム粒子を表す。前記原液貯槽3は、温度調節機能（図示していない。）を備えている。

【0014】

前記重ウラン酸アンモニウム粒子の製造装置 1 によって、まず、酸化ウラン粉末を硝酸に溶解して硝酸ウラニル溶液が調製される。次いで、この硝酸ウラニル溶液に純水および増粘剤を加えて攪拌混合して原液 2 が調製される。調製された原液 2 は、原液送液ポンプ 4 を介して原液移送配管 5 により原液滴下器 7 へ移送される。続いて、原液滴下器 7 へ移送された原液 2 は、原液滴下ノズル 6 から滴下され、滴下原液 8 となってアンモニア水溶液 9 に滴下される。このようにして、アンモニア水溶液貯槽 10 中で硝酸ウラニルとアンモニアとが反応し、重ウラン酸アンモニウム粒子 11 が形成される。

【0015】

しかしながら、このようなバッチ方式による重ウラン酸アンモニウム粒子の製造にあつては、前回のバッチ製造において用いた原液 2 が、原液移送配管 5 中に残存しており（図 3 に太線で表示している。以下、原液移送配管中に残存している原液を「残存原液」ということがある。）、この残存原液を原液滴下ノズル 6 からアンモニア水溶液 9 に滴下せざるを得なかった。つまり、新たなバッチ製造に用いる原液 2 を原液移送配管 5 により原液滴下器 7 へ移送しようとする、その新たな原液 2 の移送によって、前記残存原液が追送され、原液滴下ノズル 6 からアンモニア水溶液 9 に滴下されることとなるのである。

【0016】

前記残存原液は、原液貯槽 3 において温度制御された新たな原液 2 とは性質または性状を異にする。このため、アンモニア水溶液 9 に滴下した際に形成される重ウラン酸アンモニウム粒子 11 の変形を生じやすく、重ウラン酸アンモニウム粒子 11 を熟成、洗浄、乾燥、焙焼、還元および焼結の各工程を経て製造される二酸化ウラン粒子の真球度、外形、内部組織などのスペックを充足することができないという問題があった。このことは、製造成される二酸化ウラン粒子の歩留まりの低下にも繋がるものである。前記問題は、前記残存原液の温度が室温となり、新たな原液 2 の温度よりも高くなることに起因するものと推測される。

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0017】

この発明は、このような従来の問題を解消し、変形などのない均質な重ウラン酸アンモニウム粒子を高い歩留まりで製造することのできる、高温ガス炉用燃料の燃料核の製造に有用な重ウラン酸アンモニウム粒子の製造方法および製造装置を提供することをその課題とする。

【課題を解決するための手段】

【0018】

本発明者は、前記課題を解決するために、前回のバッチ製造工程において原液移送配管中に残存した原液の取り扱いについて種々検討した結果、この残存原液を新たな原液に混合して用いることによって、前記課題が解決できるということを見出し、この知見に基づいてこの発明を完成するに至った。

【0019】

すなわち、この発明の前記課題を解決するための第 1 の手段は、

(1) 硝酸ウラニルを含有する原液を、アンモニア水溶液に滴下させて製造するバッチ方式の重ウラン酸アンモニウム粒子の製造方法であつて、前回のバッチ製造において前記原液をアンモニア水溶液に滴下させるために配置された原液移送配管中に残存した前記原液を、新たなバッチ製造に用いる前記原液に混合することを特徴とする重ウラン酸アンモニウム粒子の製造方法である。

【0020】

また、この発明の前記課題を解決するための第 2 の手段は、

(2) 硝酸ウラニルを含有する原液を貯留する原液貯槽、前記原液を原液滴下器へ移送する原液移送配管、前記原液をアンモニア水溶液に滴下させる原液滴下器およびアンモニア水溶液を貯留するアンモニア水溶液貯槽をその順に配置したバッチ方式の重ウラン酸アン

モニウム粒子の製造装置であって、前記原液滴下器と前記アンモニア水溶液貯槽との間に、前回のバッチ製造において前記原液移送配管中に残存した前記原液を受容する残存原液受器を設置し、かつ前記残存原液受器と前記原液貯槽とを接続して前記原液移送配管中に残存した前記原液を前記原液貯槽へ循環移送する残存原液循環移送配管を設置して成ることを特徴とする重ウラン酸アンモニウム粒子の製造装置である。

【発明の効果】

【0021】

この発明によれば、前回のバッチ製造工程において原液移送配管中に残存した、温度制御されていない硝酸ウラニルを含有する原液を、新たなバッチ製造に用いる前記原液に混合して温度制御した後、アンモニア水溶液に滴下させて製造するバッチ方式の重ウラン酸アンモニウム粒子の製造方法および製造装置が提供され、この製造方法および製造装置によって重ウラン酸アンモニウム粒子を製造すると、この重ウラン酸アンモニウム粒子の熟成、洗浄、乾燥、焙焼、還元および焼結の各工程を経て製造される二酸化ウラン粒子の真球度、外形、内部組織などにおいて、変形などのない均質な重ウラン酸アンモニウム粒子を高い歩留まりで製造することができ、高温ガス炉用燃料の製造分野に寄与するところは、きわめて多大である。

【発明を実施するための最良の形態】

【0022】

(1)この発明の重ウラン酸アンモニウム粒子の製造方法は、硝酸ウラニルを含有する原液を、アンモニア水溶液に滴下させて製造するバッチ方式の重ウラン酸アンモニウム粒子の製造方法であって、前回のバッチ製造において前記原液をアンモニア水溶液に滴下させるために配置された原液移送配管中に残存した前記原液を、新たなバッチ製造に用いる前記原液に混合する製造方法である。

【0023】

また、(2)この発明の重ウラン酸アンモニウム粒子の製造装置は、硝酸ウラニルを含有する原液を貯留する原液貯槽、前記原液を原液滴下器へ移送する原液移送配管、前記原液をアンモニア水溶液に滴下させる原液滴下器およびアンモニア水溶液を貯留するアンモニア水溶液貯槽をその順に配置したバッチ方式の重ウラン酸アンモニウム粒子の製造装置であって、前記原液滴下器と前記アンモニア水溶液貯槽との間に、前回のバッチ製造において前記原液移送配管中に残存した前記原液を受容する残存原液受器を設置し、かつ前記残存原液受器と前記原液貯槽とを接続して前記原液移送配管中に残存した前記原液を前記原液貯槽へ循環移送する残存原液循環移送配管を設置して成る製造装置である。

【0024】

この発明の重ウラン酸アンモニウム粒子の製造方法および製造装置を、図1および図3に基づいて説明する。

【0025】

図1は、この発明の重ウラン酸アンモニウム粒子の製造装置の一例を示す図である。重ウラン酸アンモニウム粒子の製造装置1は、硝酸ウラニルを含有する原液2を貯蔵する原液貯槽3、前記原液2をアンモニア水溶液9に滴下させる原液滴下ノズル6を有する原液滴下器7へ移送する原液移送配管5、前記原液2をアンモニア水溶液9に滴下させる原液滴下ノズル6を有する原液滴下器7およびアンモニア水溶液9を貯蔵するアンモニア水溶液貯槽10がその順に配置されたバッチ方式の重ウラン酸アンモニウム粒子の製造装置であって、原液滴下ノズル6を有する原液滴下器7と前記アンモニア水溶液貯槽10との間に、前回のバッチ製造において、前記原液移送配管5中に残存する前記原液に由来する残存滴下原液12を受容する残存原液受器13を設置し、かつ前記残存原液受器13と前記原液貯槽3とを接続して前記原液移送配管5中に残存する前記原液を前記原液貯槽3へ循環移送する残存原液循環移送配管15を設置して成る製造装置である。4は原液送液ポンプを、14は残存原液送液ポンプを表す。点線で示す→は、残存原液の循環移送方向である。前記原液貯槽3は、温度調節機能(図示していない。)を備えている。

【0026】

前記残存原液受器 13 は、残存滴下原液 12 を受容することができる形態である限り、その形態に制限はない。例えば、図 2 に示すように、樋状の受器とすることができる。また、図 1 に示すように、残存原液受器 13 は、残存原液が円滑に循環移送できるように、若干傾斜させて設置されることが好ましく、この樋状の受器からポンプにより送液し、循環移送することができる。

【0027】

この発明の重ウラン酸アンモニウム粒子の製造方法は、以下のとおりである。

図 3 に示す従来の重ウラン酸アンモニウム粒子のバッチ方式による製造装置 1 によって、まず、酸化ウラン粉末を硝酸に溶解して硝酸ウラニル溶液が調製される。次いで、この硝酸ウラニル溶液に純水および増粘剤を加えて攪拌混合して原液 2 が調製される。

【0028】

調製された原液 2 は、原液送液ポンプ 4 を介して原液移送配管 5 により、原液滴下ノズル 6 を有する原液滴下器 7 へ移送される。続いて、原液滴下器 7 へ移送された原液 2 は、原液滴下ノズル 6 から滴下され、滴下原液 8 となってアンモニア水溶液 9 に滴下される。このようにして、アンモニア水溶液貯槽 10 中で硝酸ウラニルとアンモニアとが反応し、重ウラン酸アンモニウム粒子 11 が形成される。

【0029】

前記のとおり、重ウラン酸アンモニウム粒子 11 が製造され、引き続いて、新たなバッチにより重ウラン酸アンモニウム粒子 11 の製造を開始する。このとき、前回のバッチ製造において原液移送配管 5 中に残存している原液 2 (図 3 に太線で表示している。)を、新たに調製された原液 2 を原液移送配管 5 によって移送することによって追送する。

【0030】

追送された残存原液は、図 1 に示す重ウラン酸アンモニウム粒子の製造装置 1 における原液滴下ノズル 6 を有する原液滴下器 7 へ移送され、原液滴下ノズル 6 から残存滴下原液 12 となって落下し、残存原液受器 13 に貯留される。残存原液受器 13 に貯留された残存原液は、残存原液送液ポンプ 14 を介して残存原液循環移送配管 15 により原液貯槽 3 に移送され(図 2 に太線で表示している。)、新たな原液と混合される。

【0031】

このようにして、混合され、適宜、冷却して調製された原液 2 は、図 3 に示す従来の重ウラン酸アンモニウム粒子の製造装置 1 によって、新たなバッチ方式の重ウラン酸アンモニウム粒子の製造が再開される。この重ウラン酸アンモニウム粒子の製造の再開に当り、用いる従来の重ウラン酸アンモニウム粒子の製造装置 1 は、前記残存原液と前記新たな原液とが混合され、温度調整して原液 2 が調製された後に、この発明の重ウラン酸アンモニウム粒子の製造装置 1 から残存原液受器 13 を取り外し、または原液滴下ノズル 6 から滴下される滴下原液 8 のアンモニア水溶液貯槽 10 への落下を妨げないよう、前記残存原液受器 13 を移動させた製造装置とすればよい。

【0032】

このようにして、第 1 回目のバッチ方式による重ウラン酸アンモニウム粒子を製造した後、第 2 回目のバッチ方式による重ウラン酸アンモニウム粒子を製造し、引き続き、第 3 回目および第 4 回目と、繰り返し重ウラン酸アンモニウム粒子を製造することができる。

【0033】

この発明の重ウラン酸アンモニウム粒子の製造装置は、金属材料またはガラスを用いて作製され、この金属材料としては、機械的強度および防錆性に優れたステンレスが好ましい。また、前記製造装置の全体的な容量または大きさは、重ウラン酸アンモニウム粒子の製造規模、臨界安全対策の見地などによって、適宜、決定される。

【0034】

この発明の重ウラン酸アンモニウム粒子の製造方法および製造装置は、前回のバッチ製造工程において原液移送配管中に残存した、温度制御されていない硝酸ウラニルを含有する原液を、新たなバッチ製造に用いる前記原液に混合して温度制御した後、アンモニア水

溶液に滴下させて重ウラン酸アンモニウム粒子を製造する方法および装置であることから、その重ウラン酸アンモニウム粒子の熟成、洗浄、乾燥、焙焼、還元および焼結の各工程を経て製造される二酸化ウラン粒子の真球度、外形、内部組織などにおいて、変形などのない均質な重ウラン酸アンモニウム粒子を高い歩留まりで製造することができ、高温ガス炉用燃料の製造にきわめて有用である。

【実施例】

【0035】

以下、実施例を挙げて、この発明をさらに具体的に説明するが、この実施例によって、この発明はなんら限定されることはない。

(実施例)

【0036】

U₃O₈ 粉末 5 kg を 60 質量% 硝酸 3.3 L に溶解して、硝酸ウラニル溶液を調製した。この硝酸ウラニル溶液 7.5 L に、増粘剤として、ポリビニルアルコール水溶液（ポリビニルアルコール粉末量 13 g/L）およびテトラヒドロフルフリルアルコールを 45 容量% の割合で添加して、原液 24 L を調製した。120 分経過後のこの原液のウラン濃度は 180 g/L であり、温度は 12℃、粘度は $56 \times 10^{-3} \text{ Pa} \cdot \text{s}$ (56 cP) であった。

【0037】

前記のとおり調製された原液を、図 3 に示す重ウラン酸アンモニウム粒子の製造装置 1 の原液貯槽 3 に原液 2 として貯留させた。この原液 2 を原液送液ポンプ 4 を介して原液移送配管 5 により、原液滴下ノズル 6 を有する原液滴下器 7 へ移送した。次いで、原液 2 にアンモニアガスを吹きかけながら、原液 2 を原液滴下ノズル 6 から 28 質量% のアンモニア水溶液 9 を貯留したアンモニア水溶液貯槽 10 に滴下させて、硝酸ウラニルとアンモニアとを反応させ、重ウラン酸アンモニウム粒子 11 を製造した。このとき、原液移送配管 5 中に残存したる原液 2 (図 3 に太線で表示している。) の量は、約 750 mL であった。

【0038】

前記のとおり、重ウラン酸アンモニウム粒子 11 を製造した後、二日間を置いて、再度、前記と同様にして原液を調製した。この原液のウラン濃度は 180 g/L であり、温度は約 13℃、粘度は $55 \times 10^{-3} \text{ Pa} \cdot \text{s}$ (55 cP) であった。また、前記原液移送配管 5 中に残存した原液 2 の温度は約 24℃、粘度は $37 \times 10^{-3} \text{ Pa} \cdot \text{s}$ (37 cP) であった。

【0039】

次いで、図 3 に示す重ウラン酸アンモニウム粒子の製造装置 1 に、残存原液受器 13 および残存原液循環移送配管 15 を取り付け、図 1 に示す重ウラン酸アンモニウム粒子の製造装置 1 とした。この製造装置 1 により、図 1 に示す原液移送配管 5 中に残存している原液 2 を、前記の再度調製した原液を原液 2 として原液移送配管 5 によって移送することによって追送した。

【0040】

追送された残存原液は、原液滴下ノズル 6 を有する原液滴下器 7 へ移送され、原液滴下ノズル 6 から残存滴下原液 12 として落下し、残存原液受器 13 に貯留した。残存原液受器 13 に貯留された残存原液を、残存原液送液ポンプ 14 を介して残存原液循環移送配管 15 により原液貯槽 3 に移送し(図 1 に太線で表示している。)、前記の再度調製した原液 2 と混合した。この原液の循環および混合を 10 分間続け、その間、原液貯槽 3 中の攪拌機 (図示していない。) により、十分に攪拌混合した。

【0041】

攪拌混合して調製した原液 2 を用い、残存原液受器 13 および残存原液循環移送配管 15 を取り除いて、図 3 に示す重ウラン酸アンモニウム粒子の製造装置 1 として、再び、前記と同様にして、重ウラン酸アンモニウム粒子 11 を製造した。このとき、アンモニア水溶液 9 中で形成される重ウラン酸アンモニウム粒子 11 には、なんらの変形も認められなかった。

【0042】

このようにして製造された重ウラン酸アンモニウム粒子11に、加熱により粒子の中心まで完全に硝酸ウラニルとアンモニアとを反応させて重ウラン酸アンモニウムを生成させる熟成処理、温水により重ウラン酸アンモニウム粒子を洗浄する洗浄処理、乾燥処理および大気中で焙焼する焙焼処理を施して、三酸化ウラン粒子となし、さらに、この三酸化ウラン粒子に還元処理および焼結処理を施して、高密度のセラミックス状の二酸化ウラン粒子を得た。

【0043】

なお、前記各処理の条件は、次のとおりである。

熟成処理：用いたアンモニア水溶液70Lと共に重ウラン酸アンモニウム粒子を乾燥槽に収容し、80℃で1時間、回転させながら熟成処理した。

洗浄処理：乾燥槽中で、80℃の水30Lにより3回、次いで、エチルアルコール20Lにより30分間、洗浄処理した。

乾燥処理：乾燥槽中、100℃で1時間、若干負圧に維持して、回転させながら乾燥処理した。

焙焼処理：大気中、550℃で1時間、焙焼処理した。

還元処理：水素-窒素混合ガス雰囲気下、500℃で2時間、還元処理した。

焼結処理：水素-窒素混合ガス雰囲気下、1550℃で30分間、焼結処理した。

【0044】

このようにして得られた二酸化ウラン粒子を、篩を用いた外径選別および真球度選別機を用いた真球度選別を行い、歩留まりを調べた結果、12gの不良品が含まれていた。

(比較例)

【0045】

U₃O₈粉末5kgを60質量%硝酸3.3Lに溶解して、硝酸ウラニル溶液を調製した。この硝酸ウラニル溶液7.5Lに、増粘剤として、ポリビニルアルコール水溶液（ポリビニルアルコール粉末量13g/L）およびテトラヒドロフルフリルアルコールを45容量%の割合で添加して、原液24Lを調製した。120分経過後のこの原液のウラン濃度は180g/Lであり、温度は13℃、粘度は $55 \times 10^{-3} \text{ Pa} \cdot \text{s}$ （55cP）であった。

【0046】

前記のとおり調製された原液を、図3に示す重ウラン酸アンモニウム粒子の製造装置1の原液貯槽3に原液2として貯留させた。この原液2を原液送液ポンプ4を介して原液移送配管5により、原液滴下ノズル6を有する原液滴下器7へ移送した。次いで、原液2にアンモニアガスを吹きかけながら、原液2を原液滴下ノズル6から28質量%のアンモニア水溶液9を貯留したアンモニア水溶液貯槽10に滴下させて、硝酸ウラニルとアンモニアとを反応させ、重ウラン酸アンモニウム粒子11を製造した。このとき、原液移送配管5中に残存したる原液2（図3に太線で表示している。）の量は、約750mLであった。

【0047】

前記のとおり、重ウラン酸アンモニウム粒子11を製造した後、二日間において、再度、前記と同様にして原液を調製した。この原液のウラン濃度は180g/Lであり、温度は約13℃、粘度は $55 \times 10^{-3} \text{ Pa} \cdot \text{s}$ （55cP）であった。また、前記原液移送配管5中に残存したる原液2の温度は約22℃、粘度は $39 \times 10^{-3} \text{ Pa} \cdot \text{s}$ （39cP）であった。以下、原液移送配管5中に原液2が残存した状態で、前記と同様にして重ウラン酸アンモニウム粒子11を製造した。このとき、原液2をアンモニア水溶液貯槽10に滴下させて重ウラン酸アンモニウム粒子11を製造する初期段階において、アンモニア水溶液9中で形成される重ウラン酸アンモニウム粒子11に歪な形状が視認された。

【0048】

このようにして製造された重ウラン酸アンモニウム粒子11に、前記と同様の熟成処理、洗浄処理、乾燥処理および焙焼処理を施して、三酸化ウラン粒子となし、さらに、この三酸化ウラン粒子に、前記と同様の還元処理および焼結処理を施して、高密度のセラミッ

クス状の二酸化ウラン粒子を得た。

【0049】

このようにして得られた二酸化ウラン粒子を、篩を用いた外径選別および真球度選別機を用いた真球度選別を行い、歩留まりを調べた結果、150gの不良品が含まれていた。この比較的多量の不良品の発生は、前記の歪な形状の重ウラン酸アンモニウム粒子11に起因するものと推測される。

【図面の簡単な説明】

【0050】

【図1】図1は、この発明の重ウラン酸アンモニウム粒子の製造装置の一例を示す図である。

【図2】図2は、この発明において用いる残存原液受器の一例を示す図である。

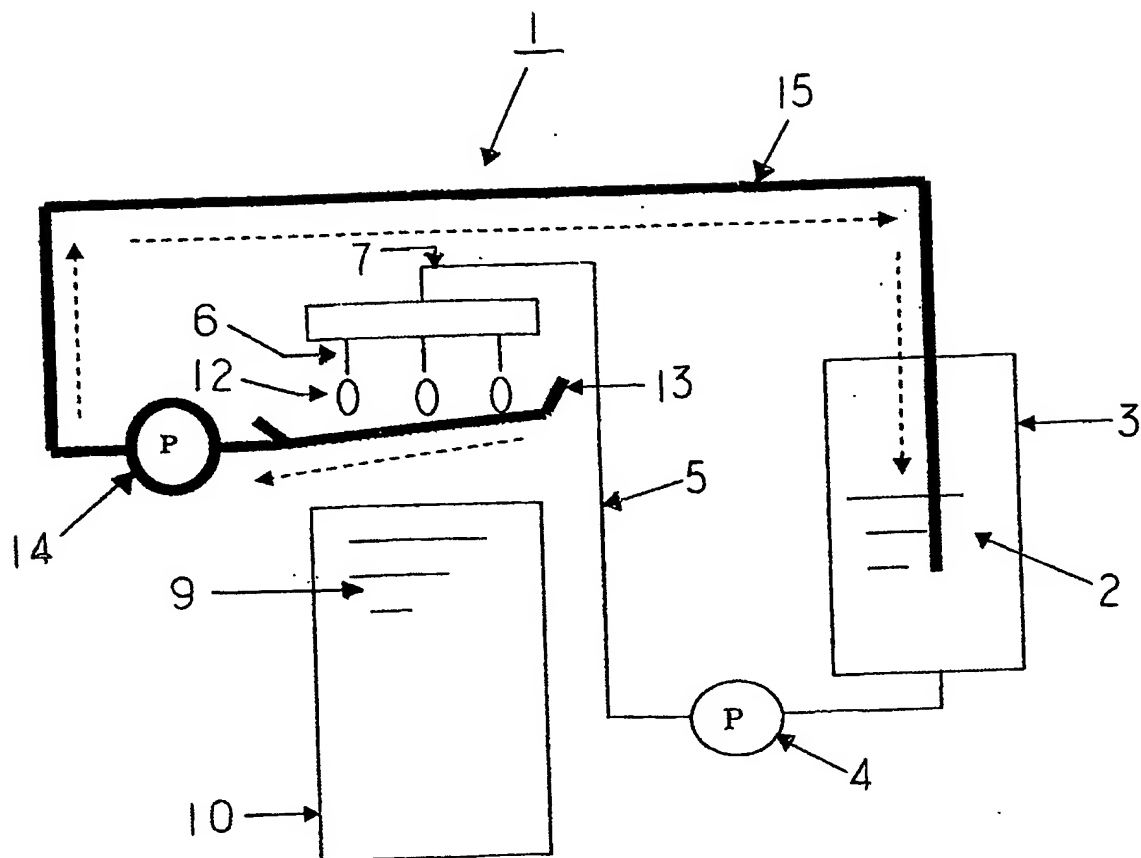
【図3】図3は、従来の重ウラン酸アンモニウム粒子の製造装置を示す図である。

【符号の説明】

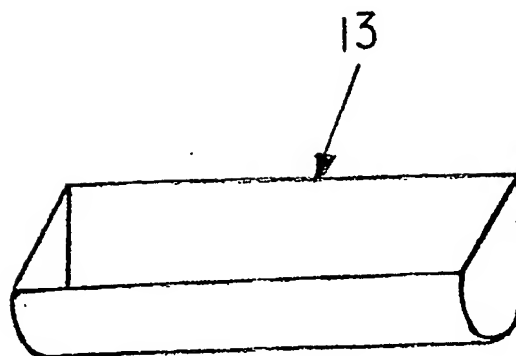
【0051】

- 1 重ウラン酸アンモニウム粒子の製造装置
- 2 原液
- 3 原液貯槽
- 4 原液送液ポンプ
- 5 原液移送配管
- 6 原液滴下ノズル
- 7 原液滴下器
- 8 滴下原液
- 9 アンモニア水溶液
- 10 アンモニア水溶液貯槽
- 11 重ウラン酸アンモニウム粒子
- 12 残存滴下原液
- 13 残存原液受器
- 14 残存原液送液ポンプ
- 15 残存原液循環移送配管

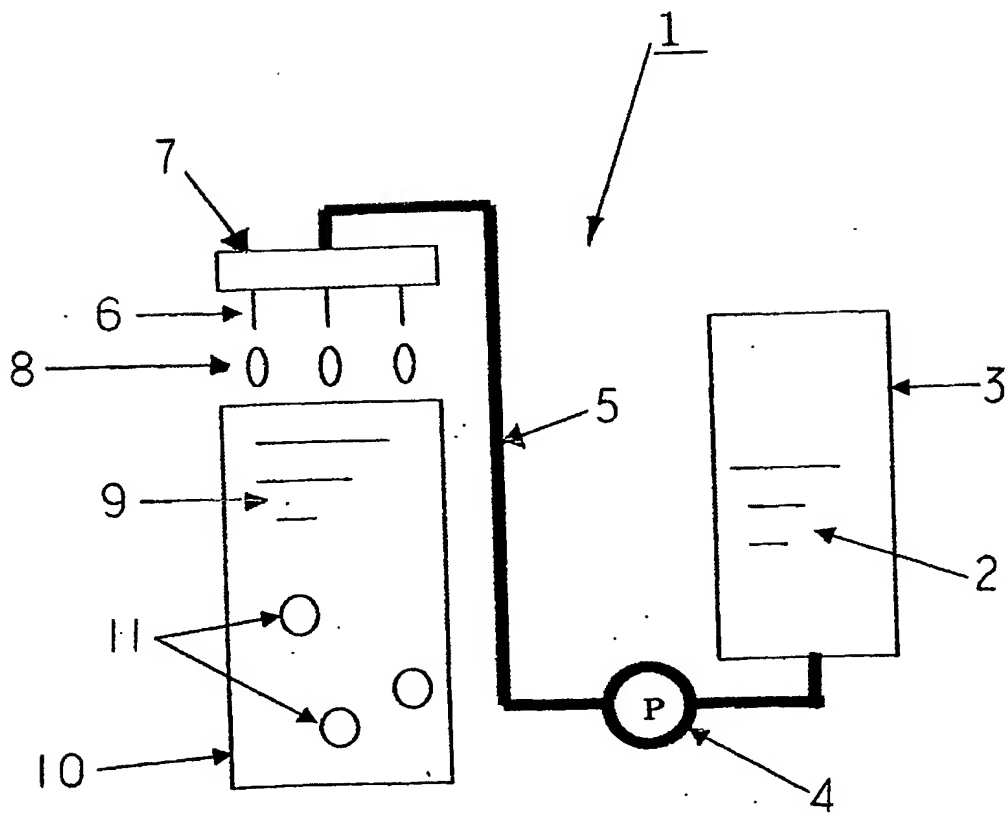
【書類名】図面
【図 1】



【図 2】



【図 3】



【書類名】要約書

【要約】

【課題】変形などのない均質な重ウラン酸アンモニウム粒子を高い歩留まりで製造することのできる、高温ガス炉用燃料の燃料核の製造に有用な重ウラン酸アンモニウム粒子の製造方法および製造装置を提供すること。

【解決手段】(1)硝酸ウラニルを含有する原液を、アンモニア水溶液に滴下させて製造するバッチ方式の重ウラン酸アンモニウム粒子の製造方法であって、前回のバッチ製造において前記原液をアンモニア水溶液に滴下させるために配置された原液移送配管中に残存した前記原液を、新たなバッチ製造に用いる前記原液に混合することを特徴とする重ウラン酸アンモニウム粒子の製造方法および(2)硝酸ウラニルを含有する原液を貯留する原液貯槽、前記原液を原液滴下器へ移送する原液移送配管、前記原液をアンモニア水溶液に滴下させる原液滴下器およびアンモニア水溶液を貯留するアンモニア水溶液貯槽をその順に配置したバッチ方式の重ウラン酸アンモニウム粒子の製造装置であって、前記原液滴下器と前記アンモニア水溶液貯槽との間に、前回のバッチ製造において前記原液移送配管中に残存した前記原液を受容する残存原液受器を設置し、かつ前記残存原液受器と前記原液貯槽とを接続して原液移送配管中に残存した前記原液を前記原液貯槽へ循環移送する残存原液循環移送配管を設置して成ることを特徴とする重ウラン酸アンモニウム粒子の製造装置。

【選択図】図 1

特願 2004-243811

出願人履歴情報

識別番号

[000165697]

1. 変更年月日
[変更理由]
住所
氏名

2001年 8月20日
住所変更
東京都港区三田三丁目14番10号
原子燃料工業株式会社

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record.**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

☒ **BLACK BORDERS**

☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**

☐ **FADED TEXT OR DRAWING**

☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**

☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**

☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**

☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**

☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**

☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**

☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.